

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2001-240671

(43)Date of publication of application : 04.09.2001

(51)Int.Cl. C08G 73/12  
 C08G 73/10  
 C08J 5/18  
 C08J 9/02  
 C08J 9/28  
 // C08L 79:08

(21)Application number : 2000-055752

(71)Applicant : UNITIKA LTD

(22)Date of filing : 01.03.2000

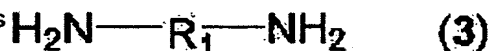
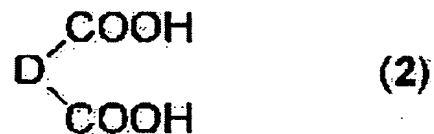
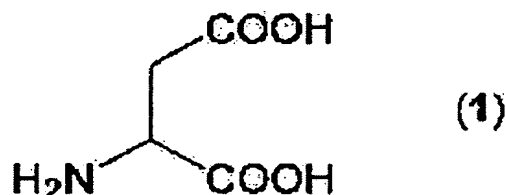
(72)Inventor : ONO TAKAHIRO  
 ECHIGO YOSHIKI

(54) POLYSUCCINIC ACID IMIDE-BASED COPOLYMER, SOLUTION OF POLYSUCCINIC ACID IMIDE-BASED COPOLYMER PRECURSOR, FOAMABLE POWDER OF POLYSUCCINIC ACID IMIDE-BASED COPOLYMER PRECURSOR, POLYSUCCINIC ACID IMIDE-BASED COPOLYMER FILM AND POLYSUCCINIC ACID IMIDE-BASED COPOLYMER FOAM OBTAINED FROM THE SOLUTION

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain a polysuccinic acid imide-based copolymer having sufficient strength and biodegradability, a solution of a polysuccinic acid imide-based copolymer precursor using a solvent neither having toxicity nor burdening an environment with a load, foamable powder of the polysuccinic acid imide-based copolymer precursor, a polysuccinic acid imide-based copolymer film and a polysuccinic acid imide-based copolymer foam.

SOLUTION: This polysuccinic acid imide-based copolymer is obtained by polymerizing aspartic acid of structural formula (1) with a dicarboxylic acid of general formula (2) (D is an organic group containing at least one polymerizable carbon-carbon double bond) and a diamine of general formula (3) (R<sub>1</sub> is a 1-20C bifunctional aliphatic group or aromatic group). This solution comprises a precursor of the copolymer as a solute. This foamable powder of the polysuccinic acid imide-based copolymer precursor, this polysuccinic acid imide-based copolymer film or foam is obtained from the solution.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or

application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision  
of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's  
decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号  
特開2001-240671  
(P2001-240671A)

(43)公開日 平成13年9月4日(2001.9.4)

(51)Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テ-マ-ト*(参考)
C 0 8 G 73/12		C 0 8 G 73/12	4 F 0 7 1
73/10		73/10	4 F 0 7 4
C 0 8 J 5/18	C F G	C 0 8 J 5/18	C F G 4 J 0 4 3
9/02	C F G	9/02	C F G
9/28		9/28	

審査請求 未請求 請求項の数 7 O L (全 8 頁) 最終頁に続く

(21)出願番号 特願2000-55752(P2000-55752)

(22)出願日 平成12年3月1日(2000.3.1)

(71)出願人 000004503

ユニチカ株式会社

兵庫県尼崎市東本町1丁目50番地

(72)発明者 小野 貴博

京都府宇治市宇治小桜23番地 ユニチカ株式会社中央研究所内

(72)発明者 越後 良彰

京都府宇治市宇治小桜23番地 ユニチカ株式会社中央研究所内

最終頁に続く

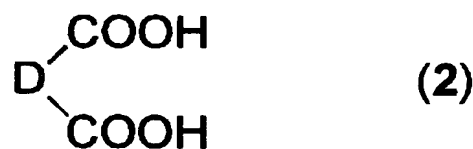
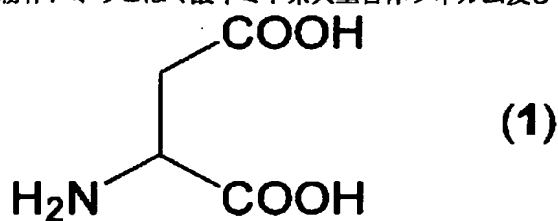
(54)【発明の名称】 ポリこはく酸イミド系共重合体、ポリこはく酸イミド系共重合体前駆体溶液、それから得られるポリこはく酸イミド系共重合体前駆体発泡性粉体、ポリこはく酸イミド系共重合体フィルム及び

(57)【要約】

【課題】 十分な強度と生分解性を有するポリこはく酸イミド系共重合体、毒性がなく、環境に負担をかけることがない溶媒を用いたポリこはく酸イミド系共重合体前駆体溶液、ポリこはく酸イミド系共重合体前駆体発泡性粉体、ポリこはく酸イミド系共重合体フィルム及びポリこはく酸イミド系共重合体発泡体を提供する。

【解決手段】 構造式(1)に示すアスパラギン酸、一般式(2)に示すジカルボン酸(式中Dは少なくとも1つの重合可能な炭素-炭素二重結合を有する炭素数2～5の有機基を表す。)及び一般式(3)に示すジアミン(式中R<sub>1</sub>は炭素数1～20の2価の脂肪族基又は芳香族基を表す。)を重合してなるポリこはく酸イミド系共重合体。その前駆体を溶質としている溶液、それから得られるポリこはく酸イミド系共重合体前駆体発泡性粉体、ポリこはく酸イミド系共重合体フィルム又は発泡体。

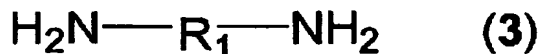
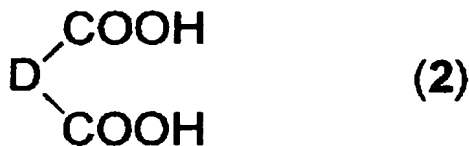
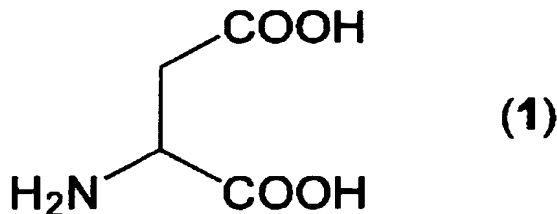
【化1】



## 【特許請求の範囲】

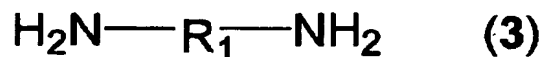
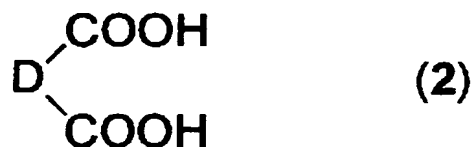
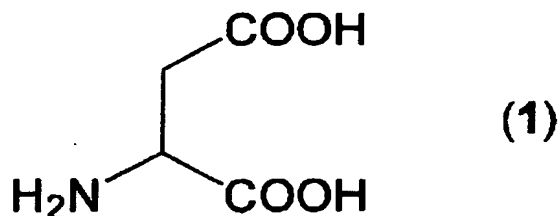
【請求項1】 構造式(1)に示すアスパラギン酸、一般式(2)に示すジカルボン酸(式中Dは少なくとも1つの重合可能な炭素-炭素二重結合を有する炭素数2～5の有機基を表す。)及び一般式(3)に示すジアミン(式中R<sub>1</sub>は炭素数1～20の2価の脂肪族基又は芳香族基を表す。)を重合してなることを特徴とするポリこはく酸イミド系共重合体。

## 【化1】



【請求項2】 構造式(1)に示すアスパラギン酸、一般式(2)に示すジカルボン酸(式中Dは少なくとも1つの重合可能な炭素-炭素二重結合を有する炭素数2～5の有機基を表す。)及び一般式(3)に示すジアミン(式中R<sub>1</sub>は炭素数1～20の2価の脂肪族基又は芳香族基を表す。)を溶質として含有していることを特徴とするポリこはく酸イミド系共重合体前駆体溶液。

## 【化2】



【請求項3】 請求項2記載のポリこはく酸イミド系共重合体前駆体溶液が水溶液であることを特徴とするポリこはく酸イミド系共重合体前駆体溶液。

【請求項4】 請求項2又は3記載のポリこはく酸イミド系共重合体前駆体溶液から得られるポリこはく酸イミド系共重合体前駆体発泡性粉体。

【請求項5】 請求項2又は3記載のポリこはく酸イミド系共重合体前駆体溶液から得られるポリこはく酸イミド系共重合体フィルム。

【請求項6】 請求項2又は3記載のポリこはく酸イミド系共重合体前駆体溶液から得られるポリこはく酸イミド系共重合体発泡体。

【請求項7】 請求項4記載の発泡性粉体から得られるポリこはく酸イミド系共重合体発泡体。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

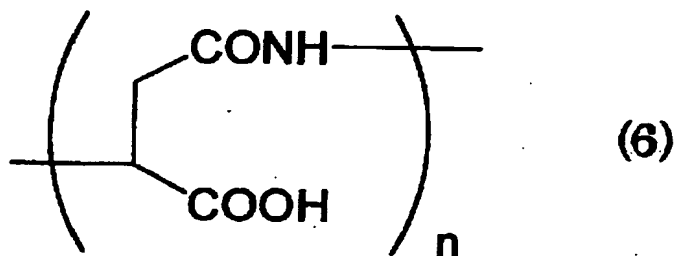
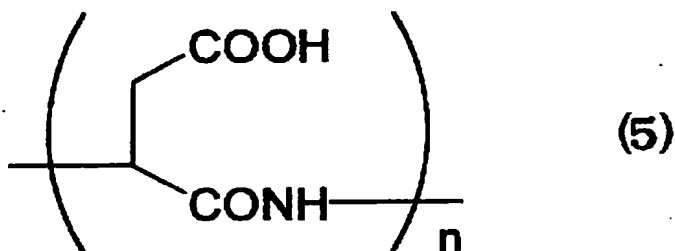
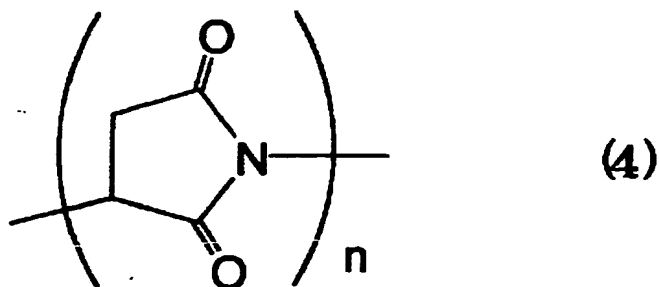
【発明の属する技術分野】 本発明は、ポリこはく酸イミド系共重合体、ポリこはく酸イミド系共重合体前駆体溶液、それから得られるポリこはく酸イミド系共重合体前駆体発泡性粉体、ポリこはく酸イミド系共重合体フィルム及びポリこはく酸イミド系共重合体発泡体に関するものである。

## 【0002】

【従来の技術】 下記構造式(4)で示されるポリこはく酸イミドは、加水分解して構造式(5)又は(6)で示されるポリアスパラギン酸になることから、環境調和型の高分子材料として、キレート剤、スケール防止剤、洗剤用ビルダー、分散剤、保湿剤、肥料用添加剤に有用である。

## 【0003】

## 【化3】



【0004】ポリこはく酸イミドの製造方法としては、例えば特公昭48-20638号公報、特公昭52-8873号公報、特開平6-211982号公報、特開平7-126379号公報、特開平7-165910号公報、特開平9-143265号公報、特開平10-72524号公報、USP5484945号明細書、USP5380817号明細書等には、アスパラギン酸又はその塩酸塩を例えば85%りん酸などの触媒の存在下に加熱して脱水縮合することによって製造する方法が開示されており、また、例えば特開平6-211983号公報、特開平6-211984号公報、特開平6-256504号公報、特開平6-298930、特開平9-31193、特開平9-309952等には、水を溶媒として無水マレイン酸にアンモニアを反応させ、マレアミド酸、またはマレイン酸アンモニウム塩を形成させ、これを加熱して脱水縮合して製造する方法が開示されている。

【0005】しかし、上記の方法で得られたポリこはく酸イミドは、フィルムやシート状にしたとき、実用に耐えうる強度を持たなかった。そのため、生鮮食品の鮮度保持剤、使い捨て雑巾、ペーパータオル等の製品の素材として使用するときには、ポリこはく酸イミド粉体をパ

ルプ等ではさみ、多層構造にして使用していた。また、特開平10-287754号公報、特開平10-292044号公報には、架橋ポリこはく酸イミドを含むスラリーをキャスト後、乾燥してフィルムを得る技術が開示されているが、これも成形品として使用するに耐えうる強度ではなかった。さらに、特開平9-48919号公報、特開平9-165446号公報、特開平10-7778号公報、特開平10-139880号公報、特開平10-168326号公報には、ポリこはく酸イミドに、熱可塑性樹脂や、アミノ酸以外のモノマーを共重合してポリこはく酸イミド単独では発揮することが困難な機械的強度のある樹脂を製造する方法が開示されているが、分解性が低下したり、耐熱性などの性能が低下する問題があった。また、特開平9-235372号公報には、多官能性ポリマーの存在下にアスパラギン酸やその他のアミノ酸を共重合することにより、機械的強度のあるフィルムを製造する技術が開示されている。しかし、この方法においては、N,N-ジメチルホルムアミド、N,N-ジメチルアセトアミドなどの毒性の強い極性溶媒を使用することから、環境衛生、安全の面から好ましいものではない。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】上記状況に鑑み、本発明の課題は、十分な強度と生分解性を有するポリこはく酸イミド系共重合体、毒性がなく、環境に負担をかけることがない溶媒を用いたポリこはく酸イミド系共重合体前駆体溶液、それから得られるポリこはく酸イミド系共重合体前駆体発泡性粉体、ポリこはく酸イミド系共重合体フィルム又はポリこはく酸イミド系共重合体発泡体を提供することにある。

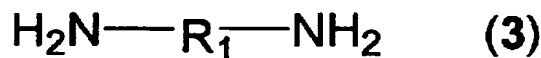
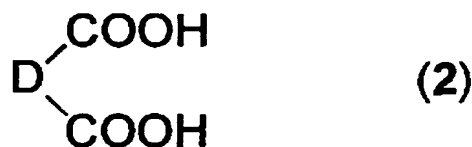
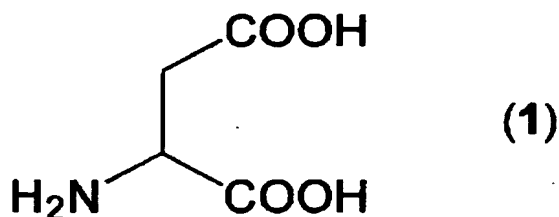
【0007】

【課題を解決するための手段】本発明者らは上記課題を解決すべく鋭意研究した結果、後述するように1つ以上の不飽和炭素-炭素結合を有するジカルボン酸とジアミンからなる塩をアスパラギン酸と共に溶媒、特に水に溶解させることによってポリこはく酸イミド系共重合体前駆体溶液が得られ、またこの溶液からポリこはく酸イミド系共重合体前駆体発泡性粉体を得ることができ、さらにこの溶液を基材上に塗工して熱処理することで高強度のポリこはく酸イミド系共重合体フィルム又は発泡体を得られ、このポリこはく酸イミド系共重合体は、生分解性であるという知見を得、本発明に到達した。特に、従来、ポリアスパラギン酸を出発物質とし、実用に耐えうる強度のポリこはく酸イミド系共重合体を得られなかったことから考えると驚くべき発見である。

【0008】すなわち、本発明の要旨は、第1に、構造式(1)に示すアスパラギン酸、一般式(2)に示すジカルボン酸(式中Dは少なくとも1つの重合可能な炭素-炭素二重結合を有する炭素数2~5の有機基を表す。)及び一般式(3)に示すジアミン(式中R<sub>1</sub>は炭素数1~20の2価の脂肪族基又は芳香族基を表す。)を重合してなることを特徴とするポリこはく酸イミド系共重合体であり、第2に、構造式(1)に示すアスパラギン酸、一般式(2)に示すジカルボン酸(式中Dは少なくとも1つの重合可能な炭素-炭素二重結合を有する炭素数2~5の有機基を表す。)及び一般式(3)に示すジアミン(式中R<sub>1</sub>は炭素数1~20の2価の脂肪族基又は芳香族基を表す。)を溶質として含有していることを特徴とするポリこはく酸イミド系共重合体前駆体溶液である。

【0009】

【化4】



【0010】そして、このポリこはく酸イミド系共重合体前駆体溶液において、溶液が水溶液であること、ジカルボン酸がマレイン酸であること、溶液内に有機塩基及び/又は無機塩基を含有することは、好ましい態様のポリこはく酸イミド系共重合体前駆体溶液である。

【0011】第3に、前記ポリこはく酸イミド系共重合体前駆体溶液から得られるポリこはく酸イミド系共重合体前駆体発泡性粉体であり、第4に、前記ポリこはく酸イミド系共重合体前駆体溶液から得られるポリこはく酸イミド系共重合体フィルムであり、第5に、前記ポリこはく酸イミド系共重合体前駆体溶液から得られるポリこはく酸イミド系共重合体発泡体であり、第6に、前記ポリこはく酸イミド系共重合体前駆体発泡性粉体から得られるポリこはく酸イミド系共重合体発泡体である。

【0012】また、前記ポリこはく酸イミド系共重合体前駆体粉体は、ポリこはく酸イミド系共重合体前駆体溶液を濃縮、固化し、粉碎することによって製造することができ、前記ポリこはく酸イミド系共重合体フィルムは、ポリこはく酸イミド系共重合体前駆体溶液を基材上に塗工し、加熱重合することによって製造することができ、ポリこはく酸イミド系共重合体発泡体は、ポリこはく酸イミド系共重合体前駆体溶液を基材上に塗工し、加熱重合するによって、又はポリこはく酸イミド系共重合体前駆体発泡性粉体を加熱発泡させ、加熱重合することによって製造することができる。

【0013】

【発明の実施の形態】以下、本発明について詳細に説明する。本発明のポリこはく酸イミド系共重合体前駆体は、構造式(1)に示すアスパラギン酸、一般式(2)に示すジカルボン酸(式中Dは少なくとも1つの重合可能な炭素-炭素二重結合を有する炭素数2~5の有機基

を表す。)、一般式(3)に示すジアミン(式中R<sub>1</sub>は炭素数1~20の2価の脂肪族基又は芳香族基を表す。)を加熱重合して得られる。

【0014】また、本発明のポリこはく酸イミド系共重合体前駆体溶液は構造式(1)に示すアスパラギン酸、一般式(2)に示すジカルボン酸(式中Dは少なくとも1つの重合可能な炭素-炭素二重結合を有する炭素数2~5の有機基を表す。)、一般式(3)に示すジアミン(式中R<sub>1</sub>は炭素数1~20の2価の脂肪族基又は芳香族基を表す。)が溶質として溶媒中に溶解している。

【0015】本発明で使用する構造式(1)に示すアスパラギン酸はL体単独でも、D体単独でも、L体とD体を任意の割合で混合したものを用いてもよいが、生分解性に優れたポリこはく酸イミド系共重合体を得る観点から、L体を単独で用いることが好ましい。

【0016】本発明で使用する一般式(2)に示すジカルボン酸は単独で用いてもよく、また二種以上を併用してもよい。かかるジカルボン酸の好ましい例としては、構造式(4)に示すマレイン酸、シトラコン酸、アコニット酸等が挙げられる、特に好ましい例としてはマレイン酸が挙げられる。

【0017】本発明で使用する一般式(3)に示すジアミンは第一級のジアミンであれば脂肪族であっても芳香族基を含むものであってもよく、またこれらを単独で用いても二種以上のジアミンを併用してもよい。かかるジアミンの好ましい例としては、脂肪族ジアミンとして、エチレンジアミン、トリメチレンジアミン、テトラメチレンジアミン、ヘキサメチレンジアミン、オクタメチレンジアミン、デカメチレンジアミン、ドデカメチレンジアミン、2, 2, 4-トリメチルヘキサメチレンジアミン、1, 2-ジアミノシクロヘキサン、1, 4-ジアミノシクロヘキサン、1, 3-ビス(アミノメチル)シクロヘキサン、4, 4'-メチレンビス(シクロヘキシルアミン)、イソホロンジアミン等が挙げられ、また、芳香族ジアミンとして、m-フェニレンジアミン、p-フェニレンジアミン、4, 4'-ジアミノジフェニルメタン、2, 6-ジアミノピリジン、m-キシリレンジアミン、p-キシリレンジアミン、2, 2'-ビス(4-アミノフェニル)プロパン、4, 4'-ジアミノジフェニルエーテル、3, 4-ジアミノジフェニルエーテル、4, 4'-ジアミノベンゾフェノン、4, 4'-ジアミノジフェニルスルホン、1, 3-ビス(p-アミノフェノキシベンゼン)、1, 3-ビス(m-アミノフェノキシベンゼン)等が挙げられ、これらの中で好ましいものとして、ヘキサメチレンジアミン、1, 3-ビス(アミノメチル)シクロヘキサン、4, 4'-メチレンビス(シクロヘキシルアミン)、m-キシリレンジアミンが挙げられ、特に好ましいものとして4, 4'-メチレンビス(シクロヘキシルアミン)が挙げられる。また、これらのジアミンは本発明の反応に不活性な基により置換

されていてもよい。これらの基として、例えばアルコキシ基やハロゲン等が挙げられる。

【0018】ポリこはく酸イミド系共重合体前駆体溶液を製造するための溶媒としては、水が好ましく、水と相溶性のある有機溶媒を本発明の効果を損なわない範囲で添加することができ、例えばメタノールやエタノール等の低級アルコール類、アセトンやメチルエチルケトン等のケトン類、N,N-ジメチルホルムアミド、N-メチルピロリドン等の非プロトン性極性溶媒等が用いられる。

【0019】本発明において一般式(2)に示すジカルボン酸に対して用いる一般式(3)に示すジアミンのモル比率は0.5~2.0モル当量が好ましく、0.5~1.5モル当量がより好ましく、0.9~1.1モル当量が特に好ましい。0.5モル以下では得られるポリこはく酸イミド系共重合体が脆くなる傾向にあり、2.0モルを超えると耐熱性のよいものが得られない傾向にある。

【0020】本発明において一般式(2)に示すジカルボン酸に対して用いる構造式(1)に示すアスパラギン酸のモル比率は0.1~2.0モル当量が好ましく、1~4モル当量が特に好ましい。アスパラギン酸のモル比率が0.1モル当量より小さいと、生分解に要する時間が増大する傾向があり、2.0モル当量より大きいと、得られたフィルムおよび発泡体の機械的強度が小さくなる傾向にある。

【0021】本発明におけるポリこはく酸イミド系共重合体前駆体溶液の濃度は、20質量%以上が好ましい。35質量%以上がより好ましく、50質量%以上がさらに好ましい。20質量%未満では塗工する際の塗工効率が低くなる。

【0022】本発明におけるポリこはく酸イミド系共重合体前駆体溶液は、構造式(1)に示すアスパラギン酸と一般式(2)に示すジカルボン酸、一般式(3)に示すジアミンを溶媒、特に水に順次溶解させることによって製造できる。アスパラギン酸が溶け残った場合は、有機塩基、及び/または無機塩基を添加して溶解させる。これらの原料を添加する順序はいかなる順序でもよい。

【0023】前記アスパラギン酸を溶解させるために添加する有機塩基及び/又は無機塩基は、単独で用いてもよく、複数の塩基を併用しても良い。また、有機塩基としてはアミン類を用いることが好ましく、水とある程度の相溶性を示すものならば第1級、第2級、第3級のいかなるアミンを用いてもよい。これら中で、特に好ましい例としてはトリエチルアミンおよび2-ジメチルアミノエタノールが挙げられる。無機塩基としては水に溶解するものならばいかなるものを用いてもよいが、特に好ましい例としてはアンモニア、水酸化アンモニウムが挙げられる。ポリこはく酸イミド系共重合体前駆体溶液にこれらの塩基は0.1~30質量%含有させることが好ましい。0.1質量%未満ではアスパラギン酸が溶解し

難く、30質量%を超えると加熱時に蒸発して環境に悪影響を与える。

【0024】また、本発明のポリこはく酸イミド系共重合体前駆体溶液には、必要に応じて例えば、有機シラン、顔料、導電性のカーボンブラック及び金属粒子のような充填剤、化学的発泡剤、物理的発泡剤、摩滅剤、誘電体、界面活性剤、潤滑剤等の他公知の添加物を本発明の効果を損なわない範囲で添加することができる。

【0025】本発明のポリこはく酸イミド系共重合体前駆体溶液からポリこはく酸イミド系共重合体フィルムを得るには、ポリこはく酸イミド系共重合体前駆体溶液を基材上に塗工し、乾燥して溶媒を除去し、加熱重合して、ポリこはく酸イミド系共重合体フィルムを基材上に形成させ、これを剥離する。また、ポリこはく酸イミド系共重合体発泡体を得るには、同様の方法で溶媒を残存させたまま加熱することにより、発泡させ、これを加熱重合することにより、ポリこはく酸イミド系共重合体発泡体が製造できる。

【0026】塗工方法としては、スリット状ノズルから押し出したり、従来公知のスピンコート法、スプレーコート法、浸漬法等の方法等が挙げられる。本発明のポリこはく酸イミド系共重合体前駆体発泡性粉体は、上述の方法で製造したポリこはく酸イミド系共重合体前駆体溶液を熱風乾燥機、真空乾燥機等によって溶媒を蒸発させて濃縮し、得られた固形物を従来公知の粉碎機や乳鉢、めのう鉢等を用いて所定の粒度まで粉碎することによって製造できる。このとき固形物中の溶媒含有量は35質量%以下にすることが好ましい。35質量%を超えると粉碎しにくくなる。

【0027】本発明において、発泡は加熱時の溶媒の蒸発によって発生するが、溶媒がなくなっても加熱条件によっては発泡が生じる。それは加熱重合の際に発生する水に起因するものである。

【0028】本発明のポリこはく酸イミド系共重合体前駆体発泡性粉体から発泡体を製造するには、例えば射出成形機や押出成形機などから押し出し、必要に応じて加熱重合させる方法、金型内にあらかじめチャージしたものを熱風乾燥機、熱プレス装置、熱板などを用いて加熱し、発泡及び熱重合する方法等を用いることができる。また、従来公知の発泡体製造装置を用いてもよい。

【0029】本発明において、ポリこはく酸イミド系共重合体前駆体をポリこはく酸イミド系共重合体に加熱重合させる温度は120～300℃が好ましく、170～230℃がより好ましい。加熱時間は加熱温度によっても変わり、5分間～30時間が好ましく、1～6時間がより好ましい。

【0030】以上のように、本発明のポリこはく酸イミド系共重合体、ポリこはく酸イミド系共重合体前駆体溶液、ポリこはく酸イミド系共重合体フィルム及び発泡体は、例えば、コンポストバッグ、ゴミ袋、肥料袋、食品

・菓子包装用フィルム、オイルフェンス、種子テープ、防水シート、外科用貼付け薬用フィルム、化粧品用フィルム、電線・ケーブル絶縁被膜、耐熱・耐冷手袋用断熱材、宇宙用断熱材、保水剤、土壌改質剤、育苗用ポット、人工皮革、食品用トレイ、緩衝材、防音剤、使い捨てタオル、ぬれティッシュ、滑り止め剤、床用クッション材、家具用クッション材、自動車用クッション材等の製造に好適に用いられる。また、耐熱性を必要とする部分にも用いられる。

#### 【0031】

【実施例】以下本発明を実施例により具体的に説明するが本発明はこれらの実施例により限定されるものではない。また、実施例中の各種測定法は次のとおりである。粘度測定：（株）トキメック社製、DV-L-BII型デジタル粘度計（B型粘度計）を用い、20℃における回転粘度を測定したものである。

引張り強度：INTESCO製 モデル2020を用いてJISK7127により20℃で測定したものである。

#### 【0032】実施例1

4, 4'-ジアミノジシクロヘキシルメタン228.9g（1.09モル）に水460gを加えて攪拌した。そこにマレイン酸126.3g（1.09モル）を加えて攪拌すると、均一な無色透明溶液が得られた。ここでL-アスパラギン酸144.8g（1.09モル）を加えて室温で1時間攪拌した。トリエチルアミン20g（0.20モル）、28質量%アンモニア水20g（0.33モル）をそれぞれ徐々に添加してさらに1時間室温で攪拌すると、溶け残っていたL-アスパラギン酸が溶解し、均一な無色透明溶液が得られた。（固形分濃度50質量%）。この溶液の粘度を測定したところ、24センチポイズであった。さらにこの溶液をフィルムアプリケーションターを用いて、ガラス板上に25μmの厚みで塗工し、50℃で30分、80℃で2時間乾燥した後、200℃で1時間、220℃で6時間熱重合を行ったところ厚み12μmのフィルムが得られた。このフィルムの引張強度は6.7kg/cm<sup>2</sup>であった。このフィルムを40℃でコンポスト試験したところ、3ヶ月後には全く形が残っていなかった。

#### 【0033】実施例2

4, 4'-ジアミノジシクロヘキシルメタン177.5g（0.84モル）に水430gを加えて攪拌した。そこにマレイン酸97.9g（0.84モル）を加えて攪拌すると、均一な無色透明溶液が得られた。ここでL-アスパラギン酸224.6g（1.69モル）を加えて室温で1時間攪拌した。トリエチルアミン20g（0.20モル）、28質量%アンモニア水50g（0.82モル）をそれぞれ徐々に添加してさらに1時間室温で攪拌すると、溶け残っていたL-アスパラギン酸が溶解し、均一な無色透明溶液が得られた。（固形分濃度50質量%）。この溶液の粘度を測定したところ、39セン



チポイズであった。さらにこの溶液をフィルムアプリケーションターを用いて、ガラス板上に25 $\mu$ mの厚みで塗工し、50℃で1時間、80℃で2時間乾燥した後、200℃で1時間、220℃で6時間熱重合を行ったところ厚み12 $\mu$ mのフィルムが得られた。このフィルムの引張強度は6.3kg/cm<sup>2</sup>であった。このフィルムを60℃でコンポスト試験したところ、1ヶ月後には全く形が残っていなかった。

#### 【0034】実施例3

ヘキサメチレンジアミン116.6g(1.00モル)に水420gを加えて攪拌した。そこに氷冷下マレイン酸116.4g(1.00モル)を加えて攪拌すると、均一な無色透明溶液が得られた。ここでL-アスパラギン酸267.0g(2.01モル)を加えて室温で1時間攪拌した。トリエチルアミン20g(0.20モル)、28質量%アンモニア水60g(0.99モル)をそれぞれ徐々に添加してさらに1時間室温で攪拌すると、溶け残っていたL-アスパラギン酸が溶解し、均一な無色透明溶液が得られた。(固形分濃度50質量%)。この溶液の粘度を測定したところ、64センチポイズであった。さらにこの溶液をフィルムアプリケーションターを用いて、ガラス板上に25 $\mu$ mの厚みで塗工し、50℃で1時間、80℃で2時間乾燥した後、200℃で1時間、220℃で6時間熱重合を行ったところ厚み12 $\mu$ mのフィルムが得られた。このフィルムの引張強度は5.6kg/cm<sup>2</sup>であった。このフィルムを40℃でコンポスト試験したところ、3ヶ月後には全く形が残っていなかった。

#### 【0035】実施例4

実施例1に記載した方法で製造したポリこはく酸イミド系共重合体前駆体溶液を、ガラス板上にフィルムアプリケーションターを用いて100 $\mu$ mの厚みで塗工し、50℃で30分、80℃で1時間乾燥した後、200℃で1時間、220℃で6時間熱重合を行ったところ厚み1mmの発泡シートが得られた。

#### 【0036】実施例5

実施例1に記載した方法で製造したポリこはく酸イミド系共重合体前駆体溶液200gを200×200×30mmの金属製バットに流延し、熱風乾燥機で140℃、2時間乾燥した。得られた透明シートを355 $\mu$ m以下に粉碎し、白色の発泡性粉体が得られた。この発泡性粉体

10gをビーカー内に入れ、熱風乾燥機で180℃、30分発泡させた後、200℃で1時間、220℃で2時間熱重合を行う事によって、0.0051g/cm<sup>3</sup>の発泡体が得られた。

#### 【0037】比較例1

L-アスパラギン酸30.0g、85%りん酸15.0gの混合物を反応器内に導入し、真空ポンプによる減圧下で180℃、6時間反応させた。系内にN,N-ジメチルホルムアミド120gを導入して生成物を溶解させた。この溶液を1Lの水に攪拌しながら徐々に投入すると、白色固体が析出した。これをろ別し、3回水で洗浄してりん酸を除去した後、メタノールで洗浄し、真空乾燥機で80℃、12時間乾燥してポリこはく酸イミド23.8g(収率92%)を得た。ポリこはく酸イミド20gを80gのN-メチルピロリドンに溶解させ、粘度2.44ポイズの橙色透明溶液を得た。この溶液をフィルムアプリケーションターを用いて、ガラス板上に50 $\mu$ mの厚みで塗工し、50℃で1時間、80℃で2時間、200℃で1時間、220℃で6時間熱処理を行ったところ、ガラス板上で粉々に砕けており、フィルムにならなかった。

#### 【0038】

【発明の効果】以上のように構成されているので、本発明のポリこはく酸イミド系共重合体は、十分な強度と生分解性を有しており、また本発明のポリこはく酸イミド系共重合体前駆体溶液は、毒性のない溶媒、特に水を用いているので、環境に負担をかけることがない。さらにこのポリこはく酸イミド系共重合体前駆体溶液からは、ポリこはく酸イミド系共重合体前駆体発泡性粉体、ポリこはく酸イミド系共重合体フィルム、ポリこはく酸イミド系共重合体発泡体を容易に製造することができ、またポリこはく酸イミド系共重合体前駆体発泡性粉体からはポリこはく酸イミド系共重合体発泡体を容易に製造することができる。さらにまた、ポリこはく酸イミド系共重合体フィルム、ポリこはく酸イミド系共重合体発泡体は十分な強度と生分解性を有している。したがって、本発明のポリこはく酸イミド系共重合体、ポリこはく酸イミド系共重合体前駆体溶液、ポリこはく酸イミド系共重合体前駆体発泡性粉体、ポリこはく酸イミド系共重合体フィルム又は発泡体は、農業用材料、衣料用材料、食品用材料、耐熱用材料等において、有用なものである。

フロントページの続き

(51) Int. Cl. 7

// C08L 79:08

識別記号

F I

C08L 79:08

ターマコード(参考)

Fターム(参考) 4F071 AA60X AF45 AH03 AH04  
AH19 BA02 BB02 BC01  
4F074 AA74 AH03 CA11 CC04Y  
DA02 DA32 DA33 DA35 DA45  
DA46 DA53 DA57 DA59  
4J043 PA04 PA05 PA08 PC065  
QB06 QB15 QB21 QB33 QB61  
QC02 QC11 QC13 QC16 RA05  
RA34 RA35 SA05 SA06 SA42  
SA47 SA61 SA62 SA81 SA82  
SB03 TA12 TA53 TA66 TA72  
TB03 UA121 UA131 UB011  
UB012 UB121 UB151 UB281  
UB301 VA021 VA061 XA12  
YB02 ZA06 ZA12 ZA22 ZA23  
ZB05 ZB11 ZB51

- (54) 【発明の名称】 ポリこはく酸イミド系共重合体、ポリこはく酸イミド系共重合体前駆体溶液、それから得られるポリこはく酸イミド系共重合体前駆体発泡性粉体、ポリこはく酸イミド系共重合体フィルム及びポリこはく酸イミド系共重合体発泡体